

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **09183874 A**(43) Date of publication of application: **15 . 07 . 97**

(51) Int. Cl. **C08L 23/10**  
**C08K 3/34**  
**C08K 5/05**  
**C08K 5/098**  
**C08K 5/52**

(21) Application number: **07352191**(22) Date of filing: **28 . 12 . 95**(71) Applicant: **TONEN CORP**

(72) Inventor: **KAWAMURA TETSUYA**  
**TERAYA TATSUO**  
**SHIMIZU SATOSHI**

(54) **PRODUCTION OF POLYPROPYLENE RESIN**  
**COMPOSITION**

(57) Abstract:

$$Nm = ([mm] + [mr] / 2) / ([mr] / 2)$$

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain a resin composition excellent in elastic modulus in bending and heat resistance useful for automobile parts, etc., having decreased adsorption of crystallization promoter on the talc by melt blending prescribed talc with melt blended composition of a specific polypropylene resin and crystallization promoter in a specific ratio.

I

**SOLUTION:** This resin composition is obtained by melt blending (A) 40-99 pts.wt. of a highly stereo regular polypropylene satisfying equation II where (Nm) is the average meso chain length calculated on the basis of equation I; ([mm]) is meso-meso triad and ([mr]) is meso-racemi triad obtained by <sup>13</sup>C-NMR measurement, (MFR) is the melt flow rate of the resin obtained according to ASTM D-1238 and (C) 0.001-5 pts.wt. (per 100 pts.wt. of component (A) and (B)) of crystallization promoter such as bis-(4-t-butylphenyl)phosphate, etc., and the composition is melt blended with (B) 1-60 pts.wt. of talc.

$$Nm \geq 97 + 29.5 (\log MFR)$$

II

COPYRIGHT: (C)1997,JPO

(19) 日本国特許庁 ( J P )

## (12) 公 開 特 許 公 報 ( A )

(11) 特許出願公開番号

特開平9-183874

(43) 公開日 平成 9 年 (1997) 7 月 15 日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 L 23/10	K E F		C 0 8 L 23/10	K E F
C 0 8 K 3/34			C 0 8 K 3/34	
5/05	K E L		5/05	K E L
5/098	K E P		5/098	K E P
5/52	K F M		5/52	K F M
審査請求 未請求 請求項の数 1 F D (全 11 頁)				

(21) 出願番号 特願平7-352191

(22) 出願日 平成 7 年 (1995) 12 月 28 日

(71) 出願人 390022998

東燃株式会社

東京都千代田区一ツ橋 1 丁目 1 番 1 号

(72) 発明者 河村 哲也

埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡一丁目 3 番 1 号 東燃株式会社総合研究所内

(72) 発明者 寺屋 竜男

埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡一丁目 3 番 1 号 東燃株式会社総合研究所内

(72) 発明者 清水 聡

埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡一丁目 3 番 1 号 東燃株式会社総合研究所内

(74) 代理人 弁理士 河備 健二 (外 1 名)

## (54) 【発明の名称】 ポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法

## (57) 【要約】

【課題】 弾性率、耐熱性が優れたポリプロピレン系樹脂組成物を製造する方法を提供する。

【解決手段】 (A) ポリプロピレン系樹脂 40～99 重量部、(B) タルク 1～60 重量部ならびに、(A) + (B) = 100 重量部に対して (C) 結晶核剤 0.001～5 重量部を含む

$$Nm = ([mm] + [mr] / 2) / ([mr] / 2) \quad (i)$$

により求められるメソ平均連鎖長 (Nm) と、ASTM D1238 に従い測定したメルトフローレート (MFR) とが、次式：

## 【数 2】

$$Nm \geq 97 + 29.5 (\log MFR)$$

(ii)

樹脂組成物の製造方法であって、(A) ポリプロピレン系樹脂として、<sup>13</sup>C - NMR で測定したメソ - メソトリアッド ([mm]) とメソ - ラセミトリアッド ([mr]) とから次式：

## 【数 1】

の関係を満たす高立体規則性ポリプロピレン系樹脂を使用し、かつ (A) ポリプロピレン系樹脂および (C) 結晶核剤を熔融ブレンドし、次いで、該熔融ブレンド物と (B) タルクとを熔融ブレンドすることを特徴とする方法。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 (A) ポリプロピレン系樹脂40～99重量部、(B) タルク1～60重量部ならびに、(A) および(B) の合計100重量部に対して(C) 結晶核剤0.001～5重量部を含む樹脂組成物の製造方法であって、 \*

$$Nm = ([mm] + [mr] / 2) / ([mr] / 2) \quad (i)$$

により求められるメソ平均連鎖長(Nm)と、ASTM D1238に従い測定したメルトフローレート(MFR)とが、次式(ii)：

## 【数2】

$$Nm \geq 97 + 29.5 (\log MFR) \quad (ii)$$

の関係を満たす高立体規則性ポリプロピレン系樹脂を使用し、かつ(A) ポリプロピレン系樹脂および(C) 結晶核剤を熔融ブレンドし、次いで、該熔融ブレンド物と(B) タルクとを熔融ブレンドすることを特徴とする方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、ポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法に関し、さらに詳しくは、工業材料用途、一般雑貨用途等に利用することができるポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法に関する。

## 【0002】

【発明が解決しようとする課題】ポリプロピレン系樹脂は、自動車、家電などの工業材料用途、各種容器、日用品などの一般雑貨用途等に広く利用されている。その弾性率、耐熱性を向上させる手段としてタルクを添加することが一般に行われている。一方、弾性率を向上させる手段としては、結晶核剤を添加する手法もある。そこで、両者を併用することも行われている(特公昭59-1741号公報)。

【0003】また、ポリプロピレン系樹脂として、プロピレン-エチレンブロック共重合体を用い、これに結晶核剤およびタルクを添加した組成物は、透明性が改善されると共に剛性や低温耐衝撃性が良好であることが特公※

$$Nm = ([mm] + [mr] / 2) / ([mr] / 2) \quad (i)$$

により求められるメソ平均連鎖長(Nm)と、ASTM D1238に従い測定したメルトフローレート(MFR)とが、次式(ii)：

## 【0008】

## 【数4】

$$Nm \geq 97 + 29.5 (\log MFR) \quad (ii)$$

の関係を満たす高立体規則性ポリプロピレン系樹脂を使用し、かつ(A) ポリプロピレン系樹脂および(C) 結晶核剤を熔融ブレンドし、次いで、該熔融ブレンド物と(B) タルクとを熔融ブレンドすることを特徴とする方法である。

【0009】本発明の好ましい態様を以下に示す。

(イ) 樹脂組成物が、(A) ポリプロピレン系樹脂70～★

$$Nm \geq 103 + 29.5 (\log MFR)$$

\* (A) ポリプロピレン系樹脂として、<sup>13</sup>C-NMRで測定したメソ-メソトライアド([mm])とメソ-ラセミトライアド([mr])とから次式(i)：

## 【数1】

※平3-74264号公報に開示されている。

【0004】上記のような樹脂組成物を製造するには、通常各成分を一括混練する。するとタルクは、結晶核剤を吸着しやすく、吸着された結晶核剤はその機能を十分に発揮することができない。そこで結晶核剤を必要量以上に添加しなければならない。ところが、場合によっては、結晶核剤を多く配合すると、樹脂の耐衝撃性を低下させてしまうことがある。また、特公平3-74264号公報に開示されているタルクの配合量は、プロピレン-エチレンブロック共重合体100重量部に対して、0.01～3.0重量部である。このような少量のタルクの配合はフィルム用途には適しているが、射出成形品とした場合には高剛性が期待できない。

【0005】本発明は、タルクおよび結晶核剤を含むポリプロピレン系樹脂組成物において、添加した結晶核剤の機能を十分に発揮させ、弾性率、耐熱性が優れたポリプロピレン系樹脂組成物を製造する方法を提供することを目的とする。

## 【0006】

【課題を解決するための手段】本発明は、(A) ポリプロピレン系樹脂40～99重量部、(B) タルク1～60重量部ならびに、(A) および(B) の合計100重量部に対して(C) 結晶核剤0.001～5重量部を含む樹脂組成物の製造方法であって、(A) ポリプロピレン系樹脂として、<sup>13</sup>C-NMRで測定したメソ-メソトライアド([mm])とメソ-ラセミトライアド([mr])とから次式(i)：

## 【0007】

## 【数3】

$$Nm = ([mm] + [mr] / 2) / ([mr] / 2) \quad (i)$$

★95重量部、(B) タルク5～30重量部ならびに、(A) および(B) の合計100重量部に対して、(C) 結晶核剤0.005～3重量部を含む上記のいずれかの方法。

(ロ) 樹脂組成物が、(A) ポリプロピレン系樹脂70～95重量部、(B) タルク5～30重量部ならびに、(A) および(B) の合計100重量部に対して、(C) 結晶核剤0.01～2重量部を含む上記のいずれかの方法。

(ハ) ポリプロピレン系樹脂が、メルトフローレート(MFR)0.01～1000である上記のいずれかの方法。

(ニ) ポリプロピレン系樹脂において、MFRとNmとが、次式(iii)：

## 【0010】

## 【数5】

$$(iii)$$

の関係を満たす上記のいずれかの方法。

(ホ) 結晶核剤が、リン酸系結晶核剤である上記のいずれかの方法。

(ヘ) 結晶核剤が、p - (t-ブチル) 安息香酸アルミニウム塩である上記のいずれかの方法。

(ト) 成分(A)および(C)を含む溶融ブレンド物と、成分(A)および(B)を含む溶融ブレンド物とを、さらに溶融ブレンドする上記のいずれかの方法。

【0011】

$$Nm \geq 97 + 29.5 (\log MFR)$$

の関係を満たす高立体規則性ポリプロピレン系樹脂である。好ましくは、次式 (iii) :

$$Nm \geq 103 + 29.5 (\log MFR)$$

の関係を満たす。さらに好ましくは、次式 (iv) :

【0014】

$$Nm \geq 109 + 29.5 (\log MFR)$$

の関係を満たす。上記の関係を満たすものでないと、剛性、耐熱性が不十分な成形品が得られる。上記の関係を満たすものであればよく、ホモポリプロピレン、プロピレンと $\alpha$ -オレフィンとの共重合体(ブロック共重合体およびランダム共重合体を含む)等が挙げられ、好ましくは耐衝撃性プロピレン共重合体(ICP)、例えばプロピレン-エチレンブロック共重合体が挙げられる。共重合体の場合、プロピレンとの共重合成分の量は、弾性率を著しく低下させないように、共重合体全体の50重量%以下のものが望ましい。

【0015】ここで、メソ平均連鎖長(Nm)は、ジェ☆

$$Nm = ([mm] + [mr] / 2) / ([mr] / 2) \quad (i)$$

により求められる。

【0017】また、メルトフローレート(MFR)は、ASTM D1238に従い、230℃、荷重2.16 kgの条件で測定した値(10分間に押し出された試料の質量をgで表したもの)である。ポリプロピレン系樹脂のMFRは、0.01~1000であるのが好ましい。0.01未満の場合、成形加工性が悪くなる傾向があり、また1000を超えると、耐衝撃性や延性が低下する傾向がある。

【0018】このようなポリプロピレン系樹脂は、その製造方法は特に限定されないが、例えば特開平7-133319号公報に詳細に記載された方法、すなわち塩化マグネシウム担持型立体規則性触媒を用い、これに適当なシラン添加予備重合、シラン添加本重合を組合せる方法により製造したものが好ましい。この方法は具体的には、

(a) マグネシウム、チタン、ハロゲンおよび電子供与性化合物を必須成分とする固体成分を、(b) 有機アルミニウム化合物および(c) 有機ケイ素化合物の存在下で、(d) オレフィンと接触させる(予備重合)ことにより得られる触媒成分を用いて、プロピレンまたは所望によりこれと他のオレフィンを、重合または共重合する(本重合)ことにより行う。

【0019】上記(a)固体成分は例えば、マグネシウ

\* 【発明の実施の形態】本発明においては、(A)ポリプロピレン系樹脂として、特定のポリプロピレン系樹脂を使用する。そのようなポリプロピレン系樹脂とは、 $^{13}C$ -NMRにより求めたメソ平均連鎖長(Nm)と、ASTM D1238に従い測定したメルトフローレート(MFR)とが、次式(ii) :

【0012】

【数6】

(ii)

※ 【0013】

【数7】

(iii)

★ 【数8】

(iv)

☆イムズ シー、ランドール(James C. Randall)による「ポリマー シーケンス ディターミネーション(Polymer Sequence Determination)」、第37頁、アカデミック プレス(Academic Press)、ロンドン、1977年に記載の方法に従って求めたものであり、具体的には $^{13}C$ -NMRにより測定したメソ-メソトリアッド([mm])とメソ-ラセミトリアッド([mr])とから、次式(i) :

【0016】

【数9】

μ化合物、チタン化合物および電子供与性化合物を接触させて調製する。なお、前記化合物のいずれもハロゲン原子を含有しない場合には、これにハロゲン化合物を加えて接触させる。マグネシウム化合物としては、例えばMg(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>等のジアルキルマグネシウム；Mg(C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub>等のジアリールマグネシウム；Mg(O C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub>等のジアルコキシマグネシウム；Mg(O C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub>等のジアリールオキシマグネシウム；C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>MgBr等のハロゲン化アルキルマグネシウム；C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>MgCl等のハロゲン化アリールマグネシウム；(C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>O)MgBr等のハロゲン化アルコキシマグネシウム；(C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>O)MgCl等のハロゲン化アリールオキシマグネシウム；MgCl<sub>2</sub>等のハロゲン化マグネシウムなどが挙げられる。マグネシウム化合物は、

(a) 固体成分調製の際に、金属マグネシウムから調製することもできる。チタン化合物は、二価、三価または四価のチタン化合物が使用でき、好ましい具体例としては、四塩化チタン、トリクロロエトキシチタン、ジクロロジブトキシチタン、ジクロロジフェノキシチタン等が挙げられる。電子供与性化合物としては、例えばカルボン酸およびその誘導体(無水物、エステル、ハライド等)、アルコール類、フェノール類、エーテル類、ケト

ン類、アミン類、アミド類、ニトリル類、アルデヒド類、アルコール類等が挙げられる。ハロゲン化合物としては、例えばメチルクロリド等のハロゲン化炭化水素；クロロエタノール等のハロゲン化アルコール；プロモフェノール等のハロゲン化フェノール； $\text{HSiCl}_3$ 等のハロゲン化ケイ素化合物；金属ハライドなどが挙げられる。上記化合物の接触は、不活性媒体（例えばヘキサン、ヘプタン、シクロヘキサン、ベンゼン、トルエン等）の存在下または不存在下で、混合攪拌するか、機械的に共粉砕することにより行われ、また40～150℃の加熱下で行うことができる。（a）固体成分の調製は、特開昭63-264607号公報、特開昭58-198503号公報および特開昭62-146904号公報に詳細に開示されている方法を用いるのが好ましい。その中の1つの好ましい方法を例示すると、（イ）金属マグネシウム、（ロ）ハロゲン化炭化水素、（ハ）一般式 $\text{X}_n\text{M}(\text{OR})_{3-n}$ （ここで、Xは水素原子、ハロゲン原子または $\text{C}_1\sim\text{C}_{20}$ 炭化水素であり；MはB、C、Al、SiまたはPであり；Rは $\text{C}_1\sim\text{C}_{20}$ 炭化水素であり；mはMの原子価であり、 $m > n \geq 0$ である）で示される化合物を接触させることにより得られるマグネシウム含有固体を（ニ）ハロゲン含有アルコールと接触させ、次いで（ホ）電子供与性化合物および（ヘ）チタン化合物と接触させる（特開昭63-264607号公報に記載の方法）。

【0020】予備重合は、上記した（a）固体成分を、（b）有機アルミニウム化合物および（c）有機ケイ素化合物の存在下で、（d）オレフィン（例えばエチレン、プロピレン、ブテン等の $\alpha$ -オレフィン）と接触させる。有機アルミニウム化合物としては、例えばトリメチルアルミニウム、トリエチルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウム、トリヘキシルアルミニウム等が挙げられる。有機ケイ素化合物としては、例えばビス（オキサシクロペンタ-3-イル）ジメトキシシラン、ジメトキシメチル-2-オキサシクロヘキシルシラン、2,3,4-トリメチル-3-アザシクロペンチルトリメトキシシラン等を挙げることができる。また、必要に応じて、電子供与性化合物を予備重合時に加えるのが好ましい。そのような電子供与性化合物としては、例えばテトラメトキシシラン、テトラフェノキシシラン、ビニルトリエトキシシラン等の有機ケイ素化合物が好ましい。

【0021】予備重合は、不活性媒体の存在下で行うのが好ましく、通常100℃以下の温度で行う。重合方式は、バッチ式でも連続式でもよく、また1段で行っても、2段以上の多段で行ってもよい。好ましくは、予備重合系での（b）有機アルミニウム化合物の濃度は、10～500ミリモル/リットルとなるように用いられ、

（a）固体成分中のチタン1g原子当たり1～50,000モルとなるように用いられる。（c）有機ケイ素化合物は、予備重合系での濃度が5～1000ミリモル/リットルになるように用いられる。予備重合により（a）固体成

分中にオレフィンポリマーが取り込まれるが、そのポリマー量を（a）固体成分1g当たり0.1～200gとするのが好ましい。

【0022】このように調製された触媒成分は、不活性媒体で希釈または洗浄することができる。洗浄後、乾燥してもよい。

【0023】かくして得られた触媒成分を用いて、有機金属化合物、さらには必要に応じて電子供与性化合物と組合せて、プロピレンの単独重合、または他のモノオレフィンとの共重合などの本重合を行う。有機金属化合物としては、Li、Mg、Ca、Zn、Alの有機化合物を使用できる。中でも特に、有機アルミニウム化合物が好ましく、例えばトリメチルアルミニウム、トリエチルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウム等のトリアルキルアルミニウム；ジエチルアルミニウムクロリド等のジアルキルアルミニウムモノハライド；エチルアルミニウムジプロミド等のモノアルキルアルミニウムジハライド；メチルアルミニウムセスキクロリド等のアルキルアルミニウムセスキハライド；ジメチルアルミニウムメトキシド等のジアルキルアルミニウムモノアルコキシド；ジイソブチルアルミニウムハイドライド等のジアルキルアルミニウムハイドライド等が挙げられる。電子供与性化合物としては、例えばジメトキシメチル-2-オキサシクロヘキシルシラン、2,3,4-トリメチル-3-アザシクロペンチルトリメトキシシラン、ビス（オキサシクロペンタ-3-イル）ジメトキシシラン等の有機ケイ素化合物が挙げられる。

【0024】本重合反応は、気相もしくは液相（例えばブタン、イソブタン、シクロヘキサン、ベンゼン、トルエン等の不活性炭化水素中および液状モノマー中）で、重合温度-80～+150℃で、重合圧力1～60気圧で行うことができる。得られる重合体の分子量の調節は、水素もしくは他の公知の分子量調節剤を存在せしめて行うことができる。重合反応はバッチ式でも連続式でもよく、また1段で行っても、2段以上の多段で行ってもよい。

【0025】上記のようにして得られる触媒成分を用いて重合反応を行うと、 $^{13}\text{C}$ -NMRにより求めたメソ平均連鎖長（Nm）と、メルトフローレート（MFR）との関係が、前記式(ii)で示される高結晶性ポリプロピレン系樹脂を得ることができる。

【0026】また、本発明で使用するポリプロピレンブロック共重合体の好ましい製造方法は、特開平7-62047号公報に記載された、プロピレンを重合して高結晶性ポリプロピレンとする工程（以下に示す工程a）と、プロピレンとエチレンを共重合する工程（以下に示す工程b）とから成る方法である。

（1）工程a

工程aは、先にポリプロピレン単独重合体の製造方法のところで述べた触媒成分の存在下でプロピレンを重合することからなる。重合反応は、気相、液相のいずれで行

ってもよく、液相で重合させる場合は、*n*-ブタン、イソブタン、*n*-ペンタン、イソペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン、ベンゼン、トルエン、キシレン等の不活性炭化水素中および液状モノマー中で行うことができる。重合温度は、通常 -80℃～+150℃、好ましくは40～120℃である。重合圧力は、例えば1～60気圧である。また、得られる重合体の分子量の調節は、水素もしくは他の公知の分子量調節剤を存在せしめることにより行われる。

【0027】工程aでは、そこで得られるポリプロピレンが該ブロック共重合体の50～98重量%、特に70～95重量%となるようにするのが望ましい。

#### (2) 工程b

プロピレンとエチレンとの共重合は、先にポリプロピレン単独重合体の製造方法のところで述べた触媒成分の存在下で行われる。共重合は、そこで得られる共重合体中のエチレン含有量が30～95重量%、望ましくは40～80重量%となるように、プロピレンとエチレンとを接触して反応させることによりなされる。共重合反応は、工程aで行われる重合条件の範囲の中から適宜選択することができ、また水素等の分子量調節剤の使用も工程aの場合と同じである。

【0028】工程bで得られる共重合体の量は、該ブロック共重合体の2～50重量%、特に5～30重量%となるようにするのが望ましい。

【0029】上記工程aおよび工程bは、その順序に、または逆に行う直列方式の他、工程aと工程bとを並列に行い、それぞれで得られるポリマーを合体する方法を採用することもできる。その中でも、工程aおよび工程bをその順序に行う直列方式が装置上有利であり、望ましい。

【0030】本発明において使用する(B)タルクは、粒径等については特に限定されない。また、タルクは、表面処理を施してあってもよい。

【0031】表面処理を行う場合には、有機シラン系またはチタニウム系カップリング剤、各種界面活性剤、シリコーンオイル、各種シラン化合物、金属石鹸、高級アルコール、重合性モノマー、ポリオレフィン、不飽和カルボン酸変性ポリオレフィン等を用いることができる。特にタルクの凝集を抑制し、組成物中での分散を向上させる効果が高い、シランカップリング剤やシリコーンオイルなどの各種シラン化合物が好ましい。

【0032】上記した(A)ポリプロピレン系樹脂および(B)タルクは、(A)40～99重量部に対して、

(B)1～60重量部が配合される。より好ましくは、

(A)70～95重量部に対して、(B)5～30重量部である。タルクの量が少なすぎるとポリプロピレン系樹脂の曲げ弾性率、耐熱性を向上させることができず、また多すぎると耐衝撃性が低下する。

【0033】本発明において使用する(C)結晶核剤

は、好ましくは、リン酸系結晶核剤、ソルビトール系結晶核剤、*p*-(*t*-ブチル)安息香酸アルミニウム塩結晶核剤およびβ晶結晶核剤からなる群より選択される化合物である。リン酸系結晶核剤としては、例えばビス(4-*t*-ブチルフェニル)リン酸、ビス(4-*t*-アミルフェニル)リン酸、ビス(4-*t*-オクチルフェニル)リン酸、ビス(2,4-ジブチルフェニル)リン酸、ビス(2,4-ジオクチルフェニル)リン酸、ビス(2-*t*-ブチル-4-メチルフェニル)リン酸、ビス(2-*t*-ブチル-4-エチルフェニル)リン酸、ビス(2-*t*-ブチル-4,6-ジメチルフェニル)リン酸、ビス(2-シクロヘキシル-4-メチルフェニル)リン酸、ビス(2-α-メチルシクロヘキシル-4-メチルフェニル)リン酸、ビス(4-フェニルフェニル)リン酸、ビス(4-クミルフェニル)リン酸、2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル)リン酸、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-*t*-ブチルフェニル)リン酸、2,2'-メチレンビス(4-エチル-6-*t*-ブチルフェニル)リン酸、2,2'-メチレンビス(4,6-ジメチルフェニル)リン酸、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-α-メチルシクロヘキシルフェニル)リン酸、2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル)リン酸、2,2'-エチリデンビス(4-*sec*-ブチル-6-*t*-ブチルフェニル)リン酸、2,2'-チオビス(4-メチル-6-*t*-ブチルフェニル)リン酸、2,2'-チオビス(4-*t*-オクチルフェニル)リン酸、2,2'-ビス(4-メチル-6-*t*-ブチルフェニル)リン酸、2,2'-ビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル)リン酸、およびこれらの塩、例えばナトリウム塩等が挙げられる。これらは1種単独でも、2種以上組合せて用いることもできる。中でも、2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル)リン酸ナトリウムは、商標アデカスタブNA-11として、また、ビス(4-*t*-ブチルフェニル)リン酸ナトリウムは、商標アデカスタブNA-10として、いずれも旭電化(株)より市販されている。

【0034】ソルビトール系結晶核剤としては、例えばジベンジリデンソルビトール、ビス(*p*-メチルベンジリデン)ソルビトール、ビス(*p*-エチルベンジリデン)ソルビトール、ビス(*p*-クロロベンジリデン)ソルビトール等が挙げられる。ビス(*p*-メチルベンジリデン)ソルビトールは、商標ゲルオールMDとして、新日本理化学(株)より、またビス(*p*-エチルベンジリデン)ソルビトールは、商標NC-4として三井東圧化学(株)より市販されている。

【0035】*p*-(*t*-ブチル)安息香酸アルミニウム塩結晶核剤は、例えばシェル結晶核剤として、シェル化学(株)より市販されている。

【0036】β晶結晶核剤としては、例えばカルボン酸のアルカリ金属またはアルカリ土類金属塩類(例えば安息香酸ナトリウム、1,2-ヒドロキシステアリン酸カリウム、コハク酸マグネシウム、フタル酸マグネシウム等)、二塩基または三塩基カルボン酸のジまたはトリエ

ステル類、芳香族スルホン酸系化合物（例えばベンゼンスルホン酸ナトリウム）、フタロシアニン系化合物（例えばフタロシアニンブルー等）やキナクリドン等の顔料などが挙げられる。中でも、キナクリドンが好ましい。

【0037】本発明においては、上記した結晶核剤を単独で、または2種以上組合せて用いることができる。

【0038】(C) 結晶核剤は、(A) および (B) の合計100重量部に対して、0.001重量部以上、好ましくは0.005重量部以上、より好ましくは0.01重量部以上で、かつ5重量部以下、好ましくは3重量部以下、より好ましくは2重量部以下の量配合される。結晶核剤の量が少なすぎると結晶核剤としての効果が低く、また多すぎると樹脂の耐衝撃性が低下する。

【0039】本発明の方法は、上記した (A) ポリプロピレン系樹脂および (C) 結晶核剤を予め溶融ブレンドし（第1段階の溶融ブレンド）、得られた溶融ブレンド物に (B) タルクを添加して再び溶融ブレンドする（第2段階の溶融ブレンド）ことを特徴とする。これは、第1段階の溶融ブレンドで、成分 (A) の少なくとも一部と成分 (C) とを溶融ブレンドし、第2段階で成分 (B)、あるいはこれと成分 (A) の残部とを溶融ブレンドすることを意味する。

【0040】第1段階の溶融ブレンド（ポリプロピレン系樹脂および結晶核剤を含む）、および第2段階の溶融ブレンド（第1段階の溶融ブレンド物およびタルクを含む）は、溶融混練法により行うことができ、例えば1軸混練機、2軸混練機、バンバリーミキサー等慣用の溶融混練装置を用いることができる。第1段階の溶融混練は、120～300℃で行うのが好ましく、より好ましくは180～250℃である。また第2段階の溶融混練は、120～300℃で行うのが好ましく、より好ましくは180～250℃である。第1段階の溶融ブレンドの後に、溶融ブレンド物をペレット化して、このペレットとタルクとを再度溶融ブレンドしても、あるいは第1の溶融ブレンドに引き続き、連続的にタルクをブレンド（例えば、サイドフィードなどのインラインブレンド）してもよい。また、成分 (A) および (C) を溶融ブレンドしておいて、これに、成分 (A) および (B) を含む溶融ブレンド物を加えて、さらに溶融ブレンドすることもできる。

【0041】本発明の方法においては、熱安定剤、酸化防止剤、帯電防止剤等慣用の各種添加剤を単独もしくは併用して添加することができる。添加剤の添加は、第1段階もしくは第2段階の溶融ブレンドのいずれにおいて行ってもよいが、好ましくは第1段階の溶融ブレンドにおいて行う。また、第1段階で添加した後に、第2段階においても樹脂の劣化を抑制するために、熱安定剤、酸化防止剤等を再度添加してもかまわない。

【0042】また、エチレン-プロピレンゴム（EPR）、スチレン-エチレン-ブタジエンゴム（SEBS）等のゴム類を添加することもできる。ゴム類は、第

1段階もしくは第2段階の溶融ブレンドのいずれにおいて添加してもよいが、第2段階の溶融ブレンドにおいて添加するのが好ましい。

#### 【0043】

【作用】ポリプロピレン系樹脂にタルクおよび結晶核剤を添加して樹脂組成物を製造する場合には、従来、すべての成分を一括して溶融ブレンドしていた。ところが、予め結晶核剤をポリプロピレン系樹脂と溶融ブレンドしておく、後でタルクを添加しても、結晶核剤のタルクへの吸着が抑制されるので、添加した結晶核剤の機能を十分に発揮させることができ、組成物の弾性率や耐熱性を効果的に向上できることが、本発明において見出された。また、本発明においては、高立体規則性ポリプロピレン系樹脂を使用することにより、曲げ弾性率、耐熱性に特に優れた樹脂組成物が得られる。

#### 【0044】

【実施例】以下の実施例により、本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれらに限定されない。

【0045】なお、実施例および比較例において、メソ平均連鎖長（Nm）は、<sup>13</sup>C-NMRを測定し、前記したランドールによる方法にしたがって、メソ-メソトライアド（[mm]）とメソ-ラセミトライアド（[mr]）とを求めて、前記式（i）に従って算出した値である。

【0046】また、曲げ弾性率は、ASTM D790に従い測定し、アイゾット衝撃強度はASTM D256に従い、23℃にて、ノッチ付アイゾット衝撃強度を測定し、熱変形温度はASTM D648に従い測定した。

#### 【0047】実施例1

(1) 高立体規則性ホモポリプロピレンの製造

##### 成分(a)の調製

還流冷却器をつけた1リットルの反応容器に、窒素ガス雰囲気下、チップ状の金属マグネシウム（純度99.5%、平均粒径1.6mm）8.3gおよびn-ヘキサン250mlを入れ、68℃で1時間攪拌後、金属マグネシウムを取り出し、65℃で減圧乾燥するという方法で予備活性化した金属マグネシウムを得た。

【0048】次に、この金属マグネシウムに、n-ブチルエーテル140mlおよびn-ブチルマグネシウムクロリドのn-ブチルエーテル溶液（1.75モル/リットル）を0.5ml加えた懸濁液を55℃に保持し、さらにn-ブチルエーテル50mlにn-ブチルクロリド38.5mlを溶解した溶液を50分間かけて滴下した。攪拌下、70℃で4時間反応を行った後、反応液を25℃に保持した。

【0049】次いで、この反応液に、HC（OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>）、55.7mlを1時間かけて滴下した。滴下終了後、60℃で15分間反応を行い、反応生成固体をn-ヘキサン各300mlで6回洗浄し、室温で1時間減圧乾燥し、マグネシウム19.0%、塩素28.9%を含むマグネシウ

ム含有固体31.6 gを回収した。

【0050】還流冷却器、攪拌機および滴下ロートを取り付けた300 mlの反応容器に、窒素ガス雰囲気下、マグネシウム含有固体6.3 gおよびn-ヘプタン50 mlを入れ、懸濁液とし、室温で攪拌しながら、2,2,2-トリクロロエタノール20 ml (0.02ミリモル)とn-ヘプタン11 mlの混合溶液を滴下ロートから30分間かけて滴下し、さらに80℃で1時間攪拌した。得られた固体を濾別し、室温のn-ヘキサン各100 mlで4回洗浄し、さらにトルエン各100 mlで2回洗浄して、固体成分を得た。

【0051】上記の固体成分にトルエン40 mlを加え、さらに四塩化チタン／トルエンの体積比が3／2になるように四塩化チタンを加えて90℃に昇温した。攪拌下に、フタル酸ジn-ブチル2 mlとトルエン5 mlの混合溶液を5分間で滴下した後、120℃で2時間攪拌した。得られた固体状物質を90℃で濾別し、トルエン各100 mlで2回、90℃で洗浄した。さらに、新たに四塩化チタン／トルエンの体積比が3／2になるように四塩化チタンを加え、120℃で2時間攪拌し、室温の各100 mlのn-ヘキサンにて7回洗浄して成分(a) 5.5 gを得た。

#### 予備重合

攪拌機を取り付けた500 mlの反応器に、窒素ガス雰囲気下、上記で得られた成分(a) 3.5 gおよびn-ヘプタン300 mlを入れ、攪拌しながら、-5℃に冷却した。次に、トリエチルアルミニウム(以下、TEALと略記する)のn-ヘプタン溶液(2.0 モル／リットル)およびジメトキシメチル-2-オキサシクロヘキシルシランを、反応系におけるTEALおよびジメトキシメチル-2-オキサシクロヘキシルシランの濃度がそれぞれ60ミリモル／リットルおよび10ミリモル／リットルとなるように添加し、5分間攪拌した。次いで、系内を減圧した後、プロピレンガスを連続的に供給し、プロピレンを4時間重合させた。重合終了後、気相のプロピレンを窒素ガスでパージし、各100 mlのn-ヘキサンで3回、室温にて固相部を洗浄した。さらに固相部を室温で1時間減圧乾燥して、触媒成分を調製した。触媒成分に含まれるマグネシウム量を測定した結果、予備重合量は、成分(a) 1 g当たり1.8 gであった。

#### 本重合

攪拌機を設けた5リットルのステンレス製オートクレーブに、窒素ガス雰囲気下で、トリイソブチルアルミニウム(以下、TIBALと略記する)のn-ヘプタン溶液(0.1 モル／リットル) 6 mlとネオペンチルトリエトキシシランのn-ヘプタン溶液(0.01モル／リットル) 6 mlを混合し、5分間保持したものを入れた。次いで、分子量調節剤としての水素ガス0.1 リットルおよび液体プロピレン3 リットルを圧入した後、反応系を70℃に昇温した。上記で得られた触媒成分42.0 mgを反応系に装入した後、1時間プロピレンの重合を行った。重合終了後、未反応のプロピレンをパージし、501.0 gの白色ポ

リプロピレン粉末を得た。成分(a) 1 g当たりのポリプロピレン生成量(CE)は、33.4 k gであった。

【0052】このホモポリプロピレンのメルトフローレート(MFR)は、0.18 g／10分であり(97+29.5(log MFR)=75.0)、メソ平均連鎖長(Nm)は88であった。また、曲げ弾性率は18,100 kgf/cm<sup>2</sup>、熱変形温度は116℃であった。

#### (2) 樹脂組成物の製造

上記(1)で製造した高立体規則性ホモポリプロピレン(PP-1と称する)とリン酸系結晶核剤であるアデカスタブNA-11(旭電化(株)製、結晶核剤1と称する)とを、表1に示す割合でドライブレンドした後、二軸混練機(TEX30型、(株)日本製鋼所製、φ30 mm、L/D=42)を用いて、混練温度200℃、回転数300 rpmの条件にて熔融混練し、ペレット化した。これに、タルク(富士タルク工業(株)製、LMS100、表面処理されていない)を表1に示す割合で添加し、再度ブレンドした後、前記した二軸混練機を用いて、同一条件にて熔融混練し、ペレット化した。このペレットから、物性測定用の試験片を射出成形し、これを用いて物性測定を行った。結果を表1に示す。

#### 【0053】実施例2

##### (1) 高立体規則性ホモポリプロピレンの製造 成分(a)の調製

実施例1と同様にして、成分(a)を調製した。

#### 予備重合

実施例1の(1)における予備重合の際に、ジメトキシメチル-2-オキサシクロヘキシルシランの代わりにビス(オキサシクロペント-3-イル)ジメトキシシランを用い、かつTEAL 60ミリモル／リットルの代わりにTIBAL 80ミリモル／リットルを用いたこと、温度-5℃を0℃に、重合時間4時間を3時間に、重合量1.8 g/g成分(a)を3.0 g/g成分(a)に変更したこと以外は同様にして予備重合を行った。

#### 本重合

実施例1の(1)における本重合の際に、ネオペンチルトリエトキシシランの代わりにジ(1-メチルブチル)ジメトキシシランを用い、TIBALの代わりにTEALを用い、かつ水素ガス量0.1 リットルを6.7 リットルに変更した以外は同様にして本重合を行った。

【0054】このホモポリプロピレンのメルトフローレートは、41.5 g／10分であり(97+29.5(log MFR)=144.7)、メソ平均連鎖長(Nm)は182であった。

#### (2) 樹脂組成物の製造

上記(1)で製造した高立体規則性ホモポリプロピレン(PP-2と称する)を用いた他は実施例1の(2)と同様にして2段階の熔融混練を行い、ペレット化し、これから試験片を作成して、実施例1と同一の物性試験に供した。結果を表1に示す。

#### 【0055】実施例3



(1) 高立体規則性のプロピレン-エチレンブロック共重合体（ICPと称する）の製造

#### 成分(a)の調製

実施例1と同様にして、成分(a)を調製した。

#### 予備重合

実施例1と同様にして、触媒成分を調製した。

#### 本重合

攪拌機を備えた5リットルのステンレス製オートクレーブに、窒素ガス雰囲気下、TEALのn-ヘプタン溶液（0.3モル/リットル）4mlとジイソプロポキシジメトキシシランのn-ヘプタン溶液（0.08モル/リットル）3mlとを混合し、5分間保持したものを仕込んだ。

【0056】次いで、分子量調節剤として、水素ガス13.5リットルおよび液体プロピレン3.0リットルを圧入した後、反応系を70℃に昇温した。上記で得られた予備重合触媒成分120mgを反応系に装入した後、1時間プロピレンの重合を行った（工程a）。重合終了後、容器内圧力が0.2kg/cm<sup>2</sup>・Gになるまで未反応のプロピレンと水素ガスをパージした。

【0057】工程aで得られたポリマーを少量採取した後、容器内に水素ガスを導入した。次いで、プロピレンとエチレンとのモル比が1.63の混合ガスを供給して、容器内圧力を6.05 kg/cm<sup>2</sup>・Gに保ち、75℃で1.2時間プロピレン-エチレン共重合を行った（工程b）。重合終了後、未反応ガスをパージして、粉末状白色のプロピレン-エチレンブロック共重合体459gを得た。

【0058】このプロピレン-エチレンブロック共重合体（ICP）におけるホモポリプロピレン部分のメルトフローレート（MFR<sub>H</sub>）は、220 g/10分であり（97+29.5（log MFR）=166.1）、メソ平均連鎖長（N<sub>m</sub>）は184であった。また、ICPのメルトフローレート（MFR）=37 g/10分、ICPにおけるエチレン-プロピレン共重合体部分の割合（C<sub>v</sub>）=18重量%、エチレン-プロピレン共重合体部分におけるエチレン含量（G<sub>v</sub>）=35重量%、ICPにおけるエチレン-プロピレン共重合体部分（冷キシレン可溶分）の極限粘度

[η]<sub>CIS</sub> = 5であった。

(2) 樹脂組成物の製造

\* 上記(1)で製造した高立体規則性のプロピレン-エチレンブロック共重合体（ICP）を用いた他は実施例1の(2)と同様にして2段階の熔融混練を行い、ペレット化し、これから試験片を作成して、実施例1と同一の物性試験に供した。結果を表1に示す。

#### 【0059】実施例4

実施例2の(2)において、表面処理タルク（実施例1で使用したタルク100重量部に対して、シラザン変性ポリシロキサン1重量部で処理して調製した）を用いた以外は実施例2と同様にして2段階の熔融混練を行い、ペレット化し、これから試験片を作成して、実施例1と同一の物性試験に供した。結果を表1に示す。

#### 【0060】実施例5

樹脂組成物製造の際に、結晶核剤1の代わりに結晶核剤2（p-（t-ブチル）安息香酸アルミニウム塩、シェル化学（株）製）を用い、PP-1 80重量部に対してタルク（表面処理なし）を20重量部使用した以外は実施例1と同様にして2段階の熔融混練を行い、ペレット化し、これから試験片を作成して、実施例1と同一の物性試験に供した。結果を表1に示す。

#### 【0061】実施例6

実施例2の(2)において、PP-2の量を80重量部に変更し、かつ第2段階の熔融混練の際に、エチレン-プロピレンゴム（EPR）（日本合成ゴム（株）製、EP961SP）10重量部をさらに添加したこと以外は実施例2と同様にして樹脂組成物を製造してペレット化した。次いで、このペレットから試験片を作成して、実施例1と同一の物性試験に供した。結果を表1に示す。

#### 【0062】実施例7

実施例6のエチレン-プロピレンゴム（EPR）を、スチレン-エチレン-ブタジエンゴム（SEBS）（シェル化学（株）製、G1652、PS含有量=29重量%）に変更した以外は実施例6と同様にして、2段階熔融混練により樹脂組成物を製造して、ペレット化した。次いで、このペレットから試験片を作成して、実施例1と同一の物性試験に供した。結果を表1に示す。

#### 【0063】

【表1】

\*

表 1

				実 施 例						
				1	2	3	4	5	6	7
成分 (重量部)										
	MFR*1	Nm*2	式(ii)値*3							
PP-1	0.18	88	75	90	-	-	-	80	-	-
PP-2	41.5	182	144.7	-	90	-	90	-	80	80
ICP	220	184	166.1	-	-	90	-	-	-	-
タルク (表面処理なし)				10	10	10	-	20	10	10
表面処理タルク				-	-	-	10	-	-	-
結晶核剤 1				0.1	0.1	0.1	0.1	-	0.1	0.1
結晶核剤 2				-	-	-	-	0.1	-	-
EPR				-	-	-	-	-	10	-
SEBS				-	-	-	-	-	-	10
熔融混練法				2段階	2段階	2段階	2段階	2段階	2段階	2段階
曲げ弾性率 (kgf/cm <sup>2</sup> )				32000	31600	21900	32200	36100	24500	25400
熱変形温度 (°C)				142	141	138	141	141	139	139
アイゾット衝撃強度 (kgf・cm/cm)				1.6	1.7	7.3	1.5	1.6	4.5	5.5

\*1 ポリプロピレン系樹脂の MFR (g/10分) ; \*2 ポリプロピレン系樹脂のメソ平均連鎖長 (Nm) ;

\*3 式(ii) :  $97 + 29.5 (\log \text{MFR})$  の計算値

#### 比較例 1

樹脂組成物製造の際に、2段階で熔融混練を行わずに、すべての成分を一括して熔融混練した以外は実施例 1 と同様にしてペレットを作成し、これから試験片を作成して、実施例 1 と同一の物性試験に供した。結果を表 2 に示す。

#### 【0064】比較例 2

樹脂組成物製造の際に、結晶核剤の量を表 2 に示した割合に代えた以外は比較例 1 と同様にして一括で熔融混練を行い、ペレット化し、これから試験片を作成して、実施例 1 と同一の物性試験に供した。結果を表 2 に示す。

#### 【0065】比較例 3

樹脂組成物製造の際に、2段階で熔融混練を行わずに、すべての成分を一括して熔融混練した以外は実施例 2 と同様にしてペレットを作成し、これから試験片を作成して、実施例 1 と同一の物性試験に供した。結果を表 2 に示す。

#### 【0066】比較例 4

\* 樹脂組成物製造の際に、結晶核剤の量を表 2 に示した割合に代えた以外は比較例 3 と同様にして一括で熔融混練を行い、ペレット化し、これから試験片を作成して、実施例 1 と同一の物性試験に供した。結果を表 2 に示す。

#### 【0067】比較例 5

樹脂組成物製造の際に、結晶核剤の量を表 2 に示したようにさらに増加した以外は比較例 3 と同様にして一括で熔融混練を行い、ペレット化し、これから試験片を作成して、実施例 1 と同一の物性試験に供した。結果を表 2 に示す。

#### 【0068】比較例 6

樹脂組成物製造の際に、2段階で熔融混練を行わずに、すべての成分を一括して熔融混練した以外は実施例 3 と同様にしてペレットを作成し、これから試験片を作成して、実施例 1 と同一の物性試験に供した。結果を表 2 に示す。

40 【0069】

\* 【表 2】

表 2

	比較例					
	1	2	3	4	5	6
成分(重量部)						
MFR*1						
Nm*2						
式(ii)値*3						
PP-1	90	90	-	-	-	-
PP-2	-	-	90	90	90	-
ICP	-	-	-	-	-	90
PP-3	-	-	-	-	-	-
タルク(表面処理なし)	10	10	10	10	10	10
表面処理タルク	-	-	-	-	-	-
結晶核剤1	0.1	0.3	0.1	0.2	0.4	0.1
結晶核剤2	-	-	-	-	-	-
EPR	-	-	-	-	-	-
SEBS	-	-	-	-	-	-
熔融混練法	一括	一括	一括	一括	一括	一括
曲げ弾性率(kgf/cm <sup>2</sup> )	28600	31500	28300	30700	32000	18800
熱変形温度(℃)	139	140	137	139	141	134
アイゾット衝撃強度(kgf・cm/cm)	1.8	1.6	1.6	1.6	1.7	7.7

\*1 ポリプロピレン系樹脂のMFR (g/10分) ; \*2 ポリプロピレン系樹脂のメソ平均連鎖長 (Nm) ;

\*3 式(ii) :  $97 + 29.5 (\log \text{MFR})$  の計算値

#### 比較例7

樹脂組成物製造の際に、2段階で熔融混練を行わずに、すべての成分を一括して熔融混練した以外は実施例4と同様にしてペレットを作成し、これから試験片を作成して、実施例1と同一の物性試験に供した。結果を表3に示す。

#### 【0070】比較例8

(1) 高立体規則性ポリプロピレンの製造

#### 成分(a)の調製

実施例1と同様にして、成分(a)を調製した。

#### 予備重合

予備重合を行なわなかった。

#### 本重合

実施例1の(1)における本重合の際に、予備重合で得られた触媒成分の代わりに成分(a)を用い、ネオペンチルトリエトキシシランの代わりにフェニルトリメトキシシランを用い、TIBALの代わりにTEALを用い、かつ水素ガス量0.1リットルを3.0リットルに変更した以外は同様にして本重合を行った。

【0071】このポリプロピレンのメルトフローレートは、9.4 g/10分であり  $(97 + 29.5 (\log \text{MFR})) = 125.7$ 、メソ平均連鎖長 (Nm) は111であった。

#### (2) 樹脂組成物の製造

上記(1)で製造した高立体規則性ポリプロピレン (PP\*

\*-3と称する)を用いた他は実施例1の(2)と同様にして2段階の熔融混練を行い、ペレット化し、これから試験片を作成して、実施例1と同一の物性試験に供した。結果を表3に示す。

#### 【0072】比較例9

30 樹脂組成物製造の際に、2段階で熔融混練を行わずに、すべての成分を一括して熔融混練した以外は実施例5と同様にしてペレットを作成し、これから試験片を作成して、実施例1と同一の物性試験に供した。結果を表3に示す。

#### 【0073】比較例10

樹脂組成物製造の際に、2段階で熔融混練を行わずに、すべての成分を一括して熔融混練した以外は実施例6と同様にしてペレットを作成し、これから試験片を作成して、実施例1と同一の物性試験に供した。結果を表3に示す。

#### 【0074】比較例11

樹脂組成物製造の際に、2段階で熔融混練を行わずに、すべての成分を一括して熔融混練した以外は実施例7と同様にしてペレットを作成し、これから試験片を作成して、実施例1と同一の物性試験に供した。結果を表3に示す。

#### 【0075】

【表3】

表 3

				比 較 例				
				7	8	9	10	11
成分 (重量部)								
	MFR <sup>*1</sup>	Nm <sup>*2</sup>	式(ii)値 <sup>*3</sup>					
PP-1	0.18	88	75	-	-	80	-	-
PP-2	41.5	182	144.7	90	-	-	80	80
ICP	220	184	166.1	-	-	-	-	-
PP-3	9.4	111	125.7	-	90	-	-	-
タルク (表面処理なし)				-	10	20	10	10
表面処理タルク				10	-	-	-	-
結晶核剤1				0.1	0.1	-	0.1	0.1
結晶核剤2				-	-	0.1	-	-
EPR				-	-	-	10	-
SEBS				-	-	-	-	10
溶融混練法				一括	2段階	一括	一括	一括
曲げ弾性率 (kgf/cm <sup>2</sup> )				28800	22400	33400	22500	23400
熱変形温度 (°C)				139	127	141	138	139
アイゾット衝撃強度 (kgf・cm/cm)				1.8	2.8	1.7	4.6	5.4

\*1 ポリプロピレン系樹脂のMFR (g/10分) ; \*2 ポリプロピレン系樹脂のメソ平均連鎖長 (Nm) ;

\*3 式(ii) :  $97 + 29.5 (\log \text{MFR})$  の計算値

表1～3から、本発明の方法（2段階の溶融ブレンド）により製造した樹脂組成物と従来の方法（一括の溶融ブレンド）により製造した樹脂組成物を比べると、本発明の方法により製造した樹脂組成物の方が曲げ弾性率および耐熱性が高いことがわかる（実施例1と比較例1、実施例2と比較例3、実施例3と比較例6、実施例4と比較例7、実施例5と比較例9）。

【0076】また、一括溶融混練による方法で、実施例1と同程度の曲げ弾性率を得るためには、3倍量の結晶核剤を必要とすることがわかる（比較例2）。同様のことが実施例2と比較例5についてもいえるが、この場合には4倍量の結晶核剤を必要とする。

【0077】NmとMFRとの関係が式(ii)を満足する\*

\* ポリプロピレン系樹脂を用いると、曲げ弾性率および耐熱性が高い樹脂組成物が得られることが分かる（実施例1および2と、比較例8）。

【0078】

【発明の効果】本発明によれば、タルクおよび結晶核剤を含むポリプロピレン系樹脂組成物において、タルクに吸着される結晶核剤量を減少させることができ、よって少量の結晶核剤の添加で、組成物の曲げ弾性率や耐熱性の向上効果を達成できる。さらに、NmとMFRとの関係が式(ii)を満足する高立体規則性ポリプロピレン樹脂を使用しているため、曲げ弾性率、耐熱性が非常に優れたポリプロピレン系樹脂組成物が得られる。